

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-170572

(43)Date of publication of application : 14.06.2002

(51)Int.Cl.

H01M 4/86
// H01M 8/10

(21)Application number : 2000-368986

(71)Applicant : SANYO ELECTRIC CO LTD

(22)Date of filing : 04.12.2000

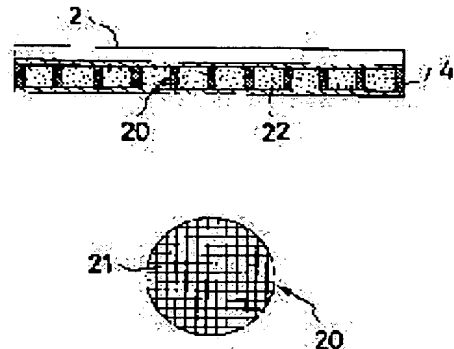
(72)Inventor : HAMADA AKIRA
NAKATO KUNIHIRO

(54) GAS DIFFUSION LAYER FOR FUEL CELL AND MANUFACTURING METHOD THEREOF

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a low-cost gas diffusion layer for a fuel cell, together with its manufacturing method, which is excellent in gas permeability, water repellency, and mechanical strength while continuous formation is possible. (イ)

SOLUTION: A gas diffusion layer is provided which is used for at least one of gas diffusion layers of a fuel cell wherein a fuel-pole side catalyst layer and an air-pole side catalyst layer are provided on both surfaces of an electrolyte film and a gas diffusion layer is provided on the outer surfaces of the fuel-pole side catalyst layer and the air-pole side catalyst layer. Here, there are provided a netty sheet of acid resistance and heat resistance, and a mixture of conductive powder and water-repellant filler which fill a void part of the netty sheet. (ロ)



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

06.12.2004

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

* NOTICES *

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The gaseous diffusion layer for fuel cells which is a gaseous diffusion layer used for at least one of said the gaseous diffusion layers of the fuel cell which has arranged the fuel electrode side catalyst bed and the air pole side catalyst bed to both sides of an electrolyte membrane, and has arranged the gaseous diffusion layer further, respectively on the external surface of a fuel electrode side catalyst bed and an air pole side catalyst bed, and is characterized by being formed from the mixture of the reticulated sheet which has thermal resistance and acid resistance, and the conductive powder and the water-repellent bulking agent which are filled up with the opening section of this reticulated sheet.

[Claim 2] The gaseous diffusion layer for fuel cells according to claim 1 characterized by carrying out the laminating of the 2nd gaseous diffusion layer which has voidage smaller than said gaseous diffusion layer while being formed in the field of said gaseous diffusion layer which contacts said catalyst bed from the mixture of conductive powder and a water-repellent bulking agent.

[Claim 3] The gaseous diffusion layer for fuel cells according to claim 2 characterized by the content of the water-repellent bulking agent contained in the 2nd gaseous diffusion layer being larger than the content of the water-repellent bulking agent contained in said gaseous diffusion layer.

[Claim 4] The gaseous diffusion layer for fuel cells given in either of claim 1 to claims 3 characterized by covering with the water-repellent ingredient beforehand the fiber which forms said reticulated sheet.

[Claim 5] The gaseous diffusion layer for fuel cells given in either of claim 2 to claims 4 characterized by the thickness of the 2nd gaseous diffusion layer being smaller than the thickness of said gaseous diffusion layer.

[Claim 6] The gaseous diffusion layer for fuel cells given in either of claim 2 to claims 5 characterized by the specific surface area of the carbon powder which the conductive powder used for said gaseous diffusion layer and the 2nd gaseous diffusion layer is carbon powder, and is used for said gaseous diffusion layer being smaller than the specific surface area of the carbon powder used for the 2nd gaseous diffusion layer.

[Claim 7] The process of claim 1 characterized by considering as the gaseous diffusion layer which it heat-treated, and it decomposed, and the ostomy agent was dispersed, and formed micropore after making a gaseous diffusion layer (precursor) using the mixture of conductive powder, a water-repellent bulking agent, and ostomy agent powder, or after carrying out the laminating of the 2nd gaseous diffusion layer (precursor) further, or the gaseous diffusion layer for fuel cells according to claim 2.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.*** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the gaseous diffusion layer for fuel cells, and its process.

[0002]

[Description of the Prior Art] Drawing 6 is the decomposition sectional view showing the basic configuration of the single cel of the solid-state macromolecule form fuel cell which is one gestalt of the conventional fuel cell. The air pole (cathode) side catalyst bed 2 which contains noble metals (mainly platinum) in the principal plane of the both sides of the solid-state polyelectrolyte film 1, respectively, and the fuel electrode (anode) side catalyst bed 3 are joined, and a cel is constituted. It counters with the air pole side catalyst bed 2 and the fuel electrode side catalyst bed 3, and the air pole side gaseous diffusion layer 4 and the fuel electrode side gaseous diffusion layer 5 are arranged, respectively. Thereby, an air pole 6 and a fuel electrode 7 are constituted, respectively. These gaseous diffusion layers 4 and 5 serve to tell a current outside at the same time they pass oxidizer gas and fuel gas, respectively. And it pinches with the separator 10 of a lot which consists of a conductive and gas impermeable ingredient which faced the cel, was equipped with the gas passageway 8 for reactant gas circulation, and equipped the principal plane which faces with the cooling water passage 9 for cooling water circulation, and the single cel 11 is constituted.

[0003] Drawing 7 is the sectional view showing the basic configuration of a solid-state macromolecule form fuel cell stack. The laminating of many single cels 11 is carried out, and it pinches by the clamping plate 14 for adding a collecting electrode plate 12, the electric insulating plate 13 aiming at electric insulation and heat insulation, and a load, and holding a laminating condition, and is bound tight with the bolt 15 and the nut 17, and the bolting load is added with the pan spring 16.

[0004] For the solid-state polyelectrolyte film 1, specific resistance is 20-ohmcm² at ordinary temperature as having the proton exchange group in the molecule and saturating moisture content. It becomes the following and functions as a proton conductivity electrolyte. Thus, the solid-state polyelectrolyte film 1 functions as a proton conductivity electrolyte by carrying out water, in the solid-state macromolecule form fuel cell, a steam is included in reactant gas at saturation, and the approach of supplying and operating in each ** cel 11 is taken.

[0005] If the fuel gas which contains hydrogen in a fuel electrode 7, and the oxidizer gas which contains oxygen in an air pole 6 are supplied, with a fuel electrode 7, by the fuel electrode reaction which decomposes a hydrogen content child into a hydrogen ion and an electron, and the air pole 6, the following electrochemical reaction which generates water from oxygen, a hydrogen ion, and an electron is performed, respectively, and while power is supplied to a load with the electron which moves toward an air pole in an external circuit from a fuel electrode, water will be generated at an air pole side.

[0006] Fuel electrode; $H_2 \rightarrow 2H^{++} + 2e^-$ (fuel electrode reaction)

Air pole; $2H^{++} + (1/2) O_2 + 2e^- \rightarrow H_2 O$ (air pole reaction)

Whole ; $H_2 + (1/2) O_2 \rightarrow H_2 O$ [0007] Thus, in an air pole 6 side, the water which water is

generated upwards by the reaction and moves to an air pole 6 side with migration of the hydrogen ion from a fuel electrode 7 side also exists. Therefore, the function of the gaseous diffusion layers 4 and 5 controlling the feeding-and-discarding appearance of 3 produced water which tells outside two currents which supply at homogeneity the reactant gas by which 1 supply is carried out to a catalyst bed, and migration water good is required. Therefore, the ingredient which gave a water-repellent finish as gaseous diffusion layers 4 and 5 at conductive foam, such as carbon paper and a carbon cross, and this conductive foam, and the ingredient which applied the mixture which becomes this conductive foam from carbon powder and a water-repellent bulking agent were used conventionally. However, in the case of carbon paper, mechanical strengths ran short, the top where the conventional gaseous diffusion layer is expensive, since it was weak, it is manufactured by the batch type, and about electrode manufacture, continuation formation is difficult and there was a problem inferior to mass-production nature.

[0008]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] The 1st purpose of this invention solves the conventional problem, it is excellent also in the mechanical strength while it is excellent in gas permeability, water repellence, etc., and it is offering the cheap gaseous diffusion layer for fuel cells in which continuation formation is possible. The 2nd purpose of this invention is offering the approach for manufacturing easily such a gaseous diffusion layer for fuel cells.

[0009]

[Means for Solving the Problem] By using the gaseous diffusion layer which filled up with and formed the mixture which becomes the opening section of this sheet from a water-repellent bulking agent like conductive powder like for example , carbon powder , and a fluororesin using the reticulated sheet which has the thermal resistance and acid resistance like the mesh made from stainless steel in order to solve the conventional problem , as a result of inquiring wholeheartedly , this invention person etc. finds out that a technical problem is solvable , and came to accomplish this invention .

[0010] Namely, the gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention according to claim 1 It is the gaseous diffusion layer used for at least one of said the gaseous diffusion layers of the fuel cell which has arranged the fuel electrode side catalyst bed and the air pole side catalyst bed to both sides of an electrolyte membrane, and has arranged the gaseous diffusion layer further, respectively on the external surface of a fuel electrode side catalyst bed and an air pole side catalyst bed. It is characterized by being formed from the mixture of the reticulated sheet which has thermal resistance and acid resistance, and the conductive powder and the water-repellent bulking agent which are filled up with the opening section of this reticulated sheet.

[0011] In the gaseous diffusion layer for fuel cells according to claim 1, the gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention according to claim 2 is characterized by carrying out the laminating of the 2nd gaseous diffusion layer which has voidage smaller than said gaseous diffusion layer while it is formed in the field of said gaseous diffusion layer which contacts said catalyst bed from the mixture of conductive powder and a water-repellent bulking agent.

[0012] The gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention according to claim 3 is characterized by the content of the water-repellent bulking agent contained in the 2nd gaseous diffusion layer being larger than the content of the water-repellent bulking agent contained in said gaseous diffusion layer in the gaseous diffusion layer for fuel cells according to claim 2.

[0013] The gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention according to claim 4 is characterized by covering beforehand with the water-repellent ingredient the fiber which forms said reticulated sheet in either of claim 1 to claims 3 in the gaseous diffusion layer for fuel cells of a publication.

[0014] The gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention according to claim 5 is characterized by the thickness of the 2nd gaseous diffusion layer being smaller than the thickness of said gaseous diffusion layer in the gaseous diffusion layer for fuel cells given in either of claim 2 to claims 4.

[0015] It is characterized by the gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention according to claim 6 being smaller than the specific surface area of the carbon powder which the specific surface area of the carbon powder which the conductive powder used for said gaseous diffusion

layer and the 2nd gaseous diffusion layer in the gaseous diffusion layer for fuel cells given in either of claim 2 to claims 5 is carbon powder, and is used for said gaseous diffusion layer uses for the 2nd gaseous diffusion layer.

[0016] Claim 7 of this invention is the process of claim 1 characterized by considering as the gaseous diffusion layer which it heat-treated, and it decomposed, and the ostomy agent was dispersed, and formed micropore, or the gaseous diffusion layer for fuel cells according to claim 2, after making a gaseous diffusion layer (precursor) using the mixture of conductive powder, a water-repellent bulking agent, and ostomy agent powder, or after carrying out the laminating of the 2nd gaseous diffusion layer (precursor) further.

[0017]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, the gestalt of operation of this invention is explained to a detail using a drawing. Drawing 1 (b) is an explanatory view which explains typically the cross section of 1 operation gestalt of the gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention, and (b) is the flat-surface explanatory view of the reticulated porosity sheet which has thermal resistance. In addition, the duplicate explanation is omitted by giving the same reference mark to the same component as the component shown in drawing 6 in drawing 1 (b) and (b).

[0018] As shown in drawing 1 (b), the opening section 21 of the reticulated sheet 20 which has the thermal resistance and acid resistance like a metal mesh is filled up with the mixture 22 of conductive powder like carbon powder, and a water-repellent bulking agent like a fluororesin, and the gaseous diffusion layer 4 for fuel cells of this invention is formed in it. The catalyst bed 2 is formed in the upper part of the gaseous diffusion layer 4 for fuel cells at homogeneity. Especially the quality of the material of the reticulated sheet 20 which has the thermal resistance and acid resistance which are used by this invention is not limited, for example, can use a metal, the ceramics, glass, engineering plastics, etc. As a metal, stainless steel system metals (SUS316, SUS304, etc.), titanium, or a titanium alloy can specifically be mentioned. Although especially the aperture of the reticulated sheet 20 is not limited, either, it is desirable to use that whose porosity (porosity) is about about 70 - 95%. Especially the gestalt of the reticulated sheet 20 is not limited, either, but the shape of the shape of the shape of the shape of the shape of a wire gauze and plain weave and a textile and a mesh and a punching metal etc. can use all.

[0019] Since the mechanical strength is high, the reticulated sheet 20 can play a role of a cel supporting material. Since the mixture 22 of conductive powder like carbon powder and a water-repellent bulking agent like a fluororesin is filled up with and formed in the opening section 21 of the reticulated sheet 20, it excels in gas permeability, water repellence, etc., and while making a catalyst bed diffuse reactant gas well and being able to supply it to it, discharge of produced water or migration water can be performed good. Moreover, since it excels in the mechanical strength, continuation formation can be carried out easily and a cheap gaseous diffusion layer can be offered.

[0020] Although the reticulated sheet 20 can also be used as it is, it is desirable to cover the fiber of the reticulated sheet 20 with a water-repellent ingredient like a fluororesin beforehand. While the water repellence near the fiber of the reticulated sheet 20 increases, and gas permeability improves and is held by covering beforehand, this water-repellent ingredient works as fiber and adhesives of conductive powder like carbon powder, and can prevent omission of conductive powder like carbon powder from the gaseous diffusion layer 4 for fuel cells.

Specifically as a water-repellent bulking agent, the Pori polytetrafluoroethylene, perfluorocarbon-sulfonic-acid, tetrafluoroethylene-perfluoro-alkyl vinyl ether copolymer, tetrafluoroethylene-hexafluoropropylene copolymer, polychlorotrifluoroethylene resin, polyvinylidene fluoride, and vinyl fluoride, a tetrafluoroethylene-ethylene copolymer, etc. can be illustrated. Specifically as conductive powder, carbon powder, graphite powder, carbon fiber powder, metal powder, metal fiber powder, the metal plating ceramics, etc. can be illustrated.

[0021] Drawing 2 (b) is an explanatory view which explains typically the cross section of other operation gestalten of the gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention, and (b) is the flat-surface explanatory view of the reticulated sheet which has thermal resistance and acid resistance. In addition, the duplicate explanation is omitted by giving the same reference mark to the same component as the component shown in drawing 6 in drawing 2 (b) and (b).

[0022] As shown in drawing 2 (b), gaseous diffusion layer 4A for fuel cells of this invention To the field which contacts the catalyst bed 2 of the gaseous diffusion layer 4 by which the mixture 22 of conductive powder like carbon powder and a water-repellent bulking agent like a fluororesin is filled up with and formed in the opening section 21 of the reticulated sheet 20 which has the thermal resistance and acid resistance like a metal mesh or [that it is the mixture which consists of conductive powder and a water-repellent bulking agent, and is the same presentation ratio as said mixture 22] — or while being formed from the mixture which has a different presentation ratio, the laminating of the 2nd gaseous diffusion layer 23 which has voidage smaller than the gaseous diffusion layer 4 is carried out. The catalyst bed 2 is formed in the upper part of the 2nd gaseous diffusion layer 23 at homogeneity.

[0023] By taking this configuration, the gaseous diffusion layer 4 in which gaseous diffusion layer 4A for fuel cells of this invention has the reticulated sheet 20 with a high mechanical strength plays a role of a cel supporting material, and the 2nd gaseous diffusion layer 23 enables formation of the more uniform catalyst bed 2. And by having carried out the laminating of the 2nd gaseous diffusion layer 23 which has voidage smaller than the gaseous diffusion layer 4, and having prepared it, the 2nd gaseous diffusion layer 23 plays the role which controls the feeding- and-discarding appearance of produced water and migration water good.

[0024] Although especially the content of the water-repellent ingredient contained in the 2nd gaseous diffusion layer 23 is not limited, it is desirable to raise from the content of the water-repellent ingredient contained in the gaseous diffusion layer 4. By raising from the content of the water-repellent ingredient contained in the gaseous diffusion layer 4, evaporation scattering to the reactant gas of produced water and migration water can be controlled.

[0025] While the water repellence near the fiber of the reticulated sheet 20 increases by covering the fiber of the reticulated sheet 20 with a water repellence ingredient like a fluororesin beforehand although it is also possible to use the reticulated sheet 20 as it is as mentioned above, and gas permeability improves and being held, it works as adhesives of conductivity [like fiber and carbon powder] powder whose water repellence ingredient of this is, and omission of conductivity powder like the carbon powder from the gaseous diffusion layer 4 can be prevented.

[0026] Especially the thickness of the 2nd gaseous diffusion layer 23 is not limited. It is desirable to make thickness of the 2nd gaseous diffusion layer 23 smaller than the thickness of the gaseous diffusion layer 4. By carrying out like this, the effect of the 2nd gaseous diffusion layer inferior to gaseous diffusion nature becomes small, and the gaseous diffusion nature as the whole cel is held.

[0027] Especially the conductive powder used for the gaseous diffusion layer 4 and 2nd gaseous diffusion layer 4A is not limited. However, since carbon powder is easy to receive and it is cheap as conductive powder, it can be used preferably. And it is desirable to constitute so that smaller [the specific surface area of the carbon powder of the gaseous diffusion layer 4] than the specific surface area of the carbon powder of 2nd gaseous diffusion layer 4A. The absorptivity of the gaseous diffusion layer 4 increases rather than the 2nd gaseous diffusion layer, and the moisture which becomes superfluous by 2nd gaseous diffusion layer 4A can be promptly moved to the gaseous diffusion layer 4, without stagnating or piling up, and it can be made to transpire in gas by carrying out like this.

[0028] Drawing 3 is an explanatory view explaining 1 operation gestalt of the process of the gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention shown in drawing 2 . As shown in drawing 3 , the reticulated sheet which has the thermal resistance and acid resistance like a metal mesh first is prepared, and the reticulated sheet given a water-repellent finish by processing and heat-treating by the emulsion of a water-repellent ingredient like a fluororesin subsequently etc. is made.

[0029] And the opening section of this water-repellent-finish reticulated sheet is filled up with the mixture of conductive powder, a water-repellent bulking agent, and ostomy agent powder, and a gaseous diffusion layer (precursor) is made. And on this gaseous diffusion layer (precursor), it applies, the laminating of the mixture of conductive powder and a water-repellent bulking agent is carried out, and the 2nd gaseous diffusion layer (precursor) is formed.

[0030] And the gaseous diffusion layer (precursor) which carried out the laminating of the 2nd gaseous diffusion layer (precursor) is heat-treated, and while decomposing and dispersing, removing the ostomy agent in said gaseous diffusion layer (precursor), having micropore and considering as a gaseous diffusion layer with high voidage, the gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention can be obtained by sintering the water-repellent bulking agent in a ring main diffusion layer (precursor).

[0031] With the above-mentioned operation gestalt, after carrying out the laminating of the 2nd gaseous diffusion layer (precursor), it heat-treated, but after heat-treating said gaseous diffusion layer (precursor), decomposing and dispersing, removing an ostomy agent and considering as a gaseous diffusion layer before carrying out the laminating of the 2nd gaseous diffusion layer (precursor), the 2nd gaseous diffusion layer may be formed.

[0032] It becomes possible to manufacture easily the gaseous diffusion layer for fuels of this invention which changed the voidage of a gaseous diffusion layer free only by adding decomposition, scattering, and a removal process for an ostomy agent by this process.

[0033]

[Example] Although an example and the example of a comparison explain this invention in more detail below, this invention is not restrained at all by these examples.

(Example 1)

** After being immersed in the FEP dispersion which adjusted the metal mesh made from SUS316 (0.2mm of wire sizes) to specific gravity 1.09, it dried and heat-treated (360 degrees C, 30 minutes), and the metal mesh by which a part of FEP layer was formed in the front face was produced.

[0034] ** Vulcan Kerosine is mixed for XC-72 (specific surface area: 250-300m² / g) 7g, 3g (PTFE 6CJ) of PTFE (polytetrafluoroethylene) powder, and 14g (ammonium hydrogencarbonate) of ostomy agent powder as a dispersion medium, and excessive kerosine is removed. Sheet forming of the obtained mixture is carried out with a roller.

[0035] ** The laminating of the metal mesh obtained by the above-mentioned ** was carried out to the sheet Plastic solid acquired by the above-mentioned **, and the sheet-like Plastic solid [a gaseous diffusion layer (precursor)] with which thickness almost equal to metal mesh thickness was filled up with the above-mentioned mixture at the opening section of finishing and a metal mesh was acquired by rolling out.

[0036] ** The gaseous diffusion layer (precursor) which the sheet-like Plastic solid acquired by the above-mentioned ** was heat-treated at 60 degrees C for 30 minutes, it decomposed, and ostomy agent powder (ammonium hydrogencarbonate) was dispersed, and was removed was made.

[0037] ** Vulcan XC-72 The paste which makes a terpeneol a dispersion medium for 6g and 60 mass %PTFE Tess Per John 6.67g, and has mixing and moderate viscosity is produced.

[0038] ** After applying the paste obtained by the above-mentioned ** by the thickness of about 0.05mm on the sheet [a gaseous diffusion layer (precursor)] obtained by the above-mentioned **, it dried at 60 degrees C for 30 minutes, and the laminating of the 2nd gaseous diffusion layer (precursor) was carried out on the gaseous diffusion layer (precursor).

[0039] ** It heat-treated at 360 degrees C after desiccation for 30 minutes, and the gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention was made by sintering PTFE (water-repellent bulking agent).

[0040] (Example 2)

** After being immersed in the FEP dispersion which adjusted the metal mesh made from SUS316 (0.2mm of wire sizes) to specific gravity 1.09, it dried and heat-treated (360 degrees C, 30min), and the metal mesh by which a part of FEP layer was formed in the front face was produced.

[0041] ** Mix kerosine for KETCHIEN black (specific surface area: 800m² / g) 7g, 3g (PTFE 6CJ) of PTFE powder, and 14g (ammonium hydrogencarbonate) of ostomy agent powder as a dispersion medium, and remove excessive kerosine. Sheet forming of the obtained mixture is carried out with a roller.

[0042] ** The laminating of the metal mesh obtained by the above-mentioned ** was carried out

to the sheet Plastic solid acquired by the above-mentioned **, and the sheet-like Plastic solid [a gaseous diffusion layer (precursor)] with which thickness almost equal to metal mesh thickness was filled up with the above-mentioned mixture at the opening section of finishing and a metal mesh was acquired by rolling out.

[0043] ** While having heat-treated the sheet-like organizer [a gaseous diffusion layer (precursor)] obtained by the above-mentioned ** at 360 degrees C after 30-minute desiccation by 60 degrees C for 30 minutes, decomposing and dispersing the ostomy agent powder (ammonium hydrogencarbonate) in a sheet-like organizer [a gaseous diffusion layer (precursor)], PTFE (water-repellent bulking agent) was sintered and the gaseous diffusion layer was made.

[0044] ** Vulcan XC-72 The paste which makes a terpeneol a dispersion medium for 6g and 60 mass %PTFE Tess Per John 6.67g, and has mixing and moderate viscosity is produced.

[0045] ** After applying the paste obtained by the above-mentioned ** by the thickness of about 0.02mm on the sheet (gaseous diffusion layer) obtained by the above-mentioned **, it dried at 60 degrees C for 30 minutes, and the laminating of the 2nd gaseous diffusion layer (precursor) was carried out.

** It heat-treated at 360 degrees C after desiccation for 30 minutes, and the gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention was made by sintering PTFE (water-repellent bulking agent) in the 2nd gaseous diffusion layer (precursor).

[0046] (Example 1 of a comparison)

** the Toray Industries make -- dry and heat-treat after being immersed in the PTFE dispersion which adjusted carbon paper TGP-060 (thickness: 0.2mm) to specific gravity 1.10 (360 degrees C, 30 minutes).

** Vulcan XC-72 The paste which makes a terpeneol a dispersion medium for 6g and 60 mass % PTFE Tess Per John 6.67g, and has mixing and moderate viscosity is produced.

** After applying the paste obtained by the above-mentioned ** by the thickness of about 0.02mm on the sheet obtained by the above-mentioned **, it dried at 60 degrees C for 30 minutes, and the gaseous diffusion layer (precursor) was made.

** It heat-treated at 360 degrees C after desiccation for 30 minutes, and the gaseous diffusion layer for a comparison was made by sintering PTFE (water-repellent bulking agent).

[0047] The gaseous diffusion layer which each produced in the example 1 of a comparison as a gaseous diffusion layer by the side of a fuel electrode while using as the gaseous diffusion layer by the side of an air pole the gaseous diffusion layer produced in the [single cel for test] examples 1 and 2 and the example 1 of a comparison is used, and it is 2 25cm of electrode surface products. The single cel for a test was produced and each ** cel was evaluated.

[0048] The current potential property of a single cel of having used the gaseous diffusion layer of examples 1 and 2 and the example 1 of a comparison for [test-result] drawing 4 is shown. Also in the single cel produced in which example, equivalency ability was mostly obtained with the example 1 of a comparison. The air utilization rate dependency of the cel electrical potential difference in each single cel of examples 1 and 2 and the example 1 of a comparison is shown in drawing 5 . In the case of the example 2, the inclination for an electrical potential difference to fall rapidly in an altitude mind utilization factor side was seen, but the inclination for the amount of sag by the side of a low air utilization rate to become small compared with the conventional example and an example 1 was seen, and equivalency ability was mostly obtained with the example 1 of a comparison also in the single cel produced in which example.

[0049]

[Effect of the Invention] The gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention according to claim 1 It is what is characterized by being formed from the mixture of the reticulated sheet which has thermal resistance and acid resistance, and the conductive powder and the water-repellent bulking agent which are filled up with the opening section of this reticulated sheet. Since a cheap ingredient can be used with high intensity as a reticulated sheet, when becoming possible to produce the gaseous diffusion layer which occupies a big ratio in the ingredient cost of the single cel of a fuel cell by low cost, Since winding up of a gaseous diffusion layer (sheet) becomes possible by using a flexible ingredient for a reticulated sheet, it becomes producible [excellent in mass-production nature], and since the mechanical strength is high, a reticulated

sheet does so remarkable effectiveness, such as playing a role of a cel supporting material. Moreover, the gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention according to claim 1 is excellent in gas permeability, water repellence, etc., and it does so the remarkable effectiveness that discharge of produced water or migration water can be performed good while a catalyst bed is made to diffuse reactant gas well and it can supply it to it.

[0050] The gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention according to claim 2 In the gaseous diffusion layer for fuel cells according to claim 1, to the field of said gaseous diffusion layer which contacts said catalyst bed Since the laminating of the 2nd gaseous diffusion layer which has voidage smaller than said gaseous diffusion layer is carried out while being formed from the mixture of conductive powder and a water-repellent bulking agent While doing so the same effectiveness as the gaseous diffusion layer for fuel cells according to claim 1, the 2nd gaseous diffusion layer does so the remarkable effectiveness of playing the role which controls the feeding-and-discarding appearance of produced water and migration water good while enabling formation of a more uniform catalyst bed.

[0051] In the gaseous diffusion layer for fuel cells according to claim 2, since the gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention according to claim 3 made larger than the content of the water-repellent bulking agent contained in said gaseous diffusion layer the content of the water-repellent bulking agent contained in the 2nd gaseous diffusion layer, it does so the remarkable effectiveness that evaporation scattering to the reactant gas of produced water and migration water can be controlled.

[0052] The gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention according to claim 4 Since the fiber which forms said reticulated sheet in either of claim 1 to claims 3 in the gaseous diffusion layer for fuel cells of a publication is beforehand covered with the water-repellent ingredient While the water repellence near the fiber of a reticulated sheet increases, and gas permeability improves and is held This water-repellent ingredient works as fiber and adhesives of conductive powder like carbon powder, and the remarkable effectiveness that omission of conductive powder like carbon powder can be prevented from the gaseous diffusion layer for fuel cells is done so.

[0053] Since the gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention according to claim 5 made thickness of the 2nd gaseous diffusion layer smaller than the thickness of said gaseous diffusion layer in the gaseous diffusion layer for fuel cells given in either of claim 2 to claims 4, the effect of the 2nd gaseous diffusion layer inferior to gaseous diffusion nature becomes small, and the remarkable effectiveness that the gaseous diffusion nature as the whole cel is held is done so.

[0054] The gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention according to claim 6 In the gaseous diffusion layer for fuel cells given in either of claim 2 to claims 6 The conductive powder used for said gaseous diffusion layer and the 2nd gaseous diffusion layer is carbon powder that acquisition is easy and cheap. And since the specific surface area of the carbon powder used for said gaseous diffusion layer made it smaller than the specific surface area of the carbon powder used for the 2nd gaseous diffusion layer It rises rather than the 2nd gaseous diffusion layer, and the absorptivity of a gaseous diffusion layer moves promptly the moisture which becomes superfluous in the 2nd gaseous diffusion layer to a gaseous diffusion layer, without stagnating or piling up, and does so the remarkable effectiveness of the ability to make it transpire in gas.

[0055] The remarkable effectiveness of becoming possible to manufacture easily the gaseous diffusion layer for fuels which changed the voidage of a gaseous diffusion layer free only by adding decomposition, scattering, and a removal process for an ostomy agent by the process of the gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention according to claim 7 is done so.

[Translation done.]

*** NOTICES ***

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.*** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] (b) is an explanatory view which explains typically the cross section of 1 operation gestalt of the gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention, and (b) is the flat-surface explanatory view of the reticulated sheet which has thermal resistance.

[Drawing 2] (b) is an explanatory view which explains typically the cross section of other gaseous diffusion layers for fuel cells of this invention, and (b) is the flat-surface explanatory view of the reticulated sheet which has thermal resistance.

[Drawing 3] It is an explanatory view explaining the process of 1 operation gestalt of the gaseous diffusion layer for fuel cells of this invention.

[Drawing 4] It is the graph which shows the relation of a cel voltage-current consistency.

[Drawing 5] It is the graph which shows the relation of a cel electrical-potential-difference-air utilization rate.

[Drawing 6] It is the decomposition sectional view showing the basic configuration of the single cel of the solid-state macromolecule form fuel cell which is one gestalt of a fuel cell.

[Drawing 7] It is the sectional view showing the basic configuration of a solid-state macromolecule form fuel cell stack.

[Description of Notations]

- 1 Solid-state Polyelectrolyte Film
- 2 Air Pole Side Catalyst Bed
- 3 Fuel Electrode Side Catalyst Bed
- 4 Air Pole Side Gaseous Diffusion Layer
- 5 Fuel Electrode Side Gaseous Diffusion Layer
- 6 Air Pole
- 7 Fuel Electrode
- 8 Gas Passageway
- 9 Cooling Water Passage
- 10 Separator
- 11 Single Cel
- 20 Reticulated Sheet
- 21 Opening Section
- 22 Mixture of Conductive Powder and Water-repellent Bulking Agent
- 23 2nd Gaseous Diffusion Layer

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-170572

(P2002-170572A)

(43) 公開日 平成14年6月14日 (2002.6.14)

(51) Int.Cl.⁷

識別記号

F I

テーマコード* (参考)

H 0 1 M 4/86

H 0 1 M 4/86

H 5 H 0 1 8

// H 0 1 M 8/10

8/10

5 H 0 2 6

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願2000-368986(P2000-368986)

(22) 出願日 平成12年12月4日 (2000.12.4)

(71) 出願人 000001889

三洋電機株式会社

大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号

(72) 発明者 横田 陽

大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号 三
洋電機株式会社内

(72) 発明者 中藤 邦弘

大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号 三
洋電機株式会社内

(74) 代理人 100062225

弁理士 秋元 輝雄

最終頁に続く

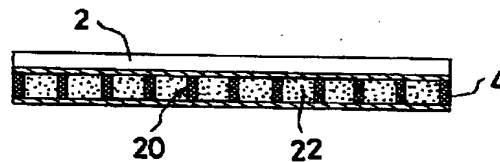
(54) 【発明の名称】 燃料電池用ガス拡散層およびその製法

(57) 【要約】

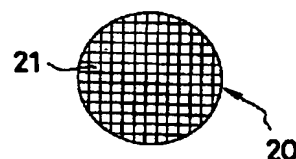
【課題】 ガス透過性、撥水性などに優れるとともに機械的強度にも優れており、連続形成が可能である安価な燃料電池用ガス拡散層の提供およびその製法の提供。

【解決手段】 電解質膜の両面に燃料極側触媒層および空気極側触媒層を配置し、さらに燃料極側触媒層および空気極側触媒層の外面にそれぞれガス拡散層を配置した燃料電池の前記ガス拡散層の少なくとも1つに用いるガス拡散層であって、耐熱性および耐酸性を有する網状シートと、この網状シートの空隙部を充填する導電性粉末と撥水性充填剤との混合物から形成されていることを特徴とする。

(イ)



(ロ)



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 電解質膜の両面に燃料極側触媒層および空気極側触媒層を配置し、さらに燃料極側触媒層および空気極側触媒層の外面にそれぞれガス拡散層を配置した燃料電池の前記ガス拡散層の少なくとも 1 つに用いるガス拡散層であって、耐熱性および耐酸性を有する網状シートと、この網状シートの空隙部を充填する導電性粉末と撥水性充填剤との混合物から形成されていることを特徴とする燃料電池用ガス拡散層。

【請求項 2】 前記触媒層に当接する前記ガス拡散層の面に、導電性粉末と撥水性充填剤との混合物から形成されるとともに前記ガス拡散層より小さい空隙率を有する第 2 ガス拡散層が積層されていることを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池用ガス拡散層。

【請求項 3】 第 2 ガス拡散層に含まれる撥水性充填剤の含有量が前記ガス拡散層に含まれる撥水性充填剤の含有量よりも大きいことを特徴とする請求項 2 記載の燃料電池用ガス拡散層。

【請求項 4】 前記網状シートを形成する繊維が予め撥水性材料により被覆されていることを特徴とする請求項 1 から請求項 3 のいずれかに記載の燃料電池用ガス拡散層。

【請求項 5】 第 2 ガス拡散層の厚みが前記ガス拡散層の厚みより小さいことを特徴とする請求項 2 から請求項 4 のいずれかに記載の燃料電池用ガス拡散層。

【請求項 6】 前記ガス拡散層および第 2 ガス拡散層に用いる導電性粉末がカーボン粉末であり、かつ前記ガス拡散層に用いるカーボン粉末の比表面積が第 2 ガス拡散層に用いるカーボン粉末の比表面積よりも小さいことを特徴とする請求項 2 から請求項 5 のいずれかに記載の燃料電池用ガス拡散層。

【請求項 7】 導電性粉末と撥水性充填剤と造孔剤粉末との混合物を用いてガス拡散層（前駆体）を作った後、あるいはさらに第 2 ガス拡散層（前駆体）を積層した後、熱処理して造孔剤を分解、飛散させて微細孔を形成したガス拡散層とすることを特徴とする請求項 1 あるいは請求項 2 記載の燃料電池用ガス拡散層の製法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、燃料電池用ガス拡散層およびその製法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 図 6 は、従来の燃料電池の 1 形態である固体高分子形燃料電池の単セルの基本構成を示す分解断面図である。固体高分子電解質膜 1 の両側の主面にそれぞれ貴金属（主として白金）を含む空気極（カソード）側触媒層 2 および燃料極（アノード）側触媒層 3 を接合してセルが構成される。空気極側触媒層 2 および燃料極側触媒層 3 と対向して、それぞれ空気極側ガス拡散層 4

および燃料極側ガス拡散層 5 が配置される。これによりそれぞれ空気極 6 および燃料極 7 が構成される。これらのガス拡散層 4 および 5 は、それぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスを通過させると同時に、電流を外部に伝える働きをする。そして、セルに面して反応ガス流通用のガス流路 8 を備え、相対する主面に冷却水流通用の冷却水流路 9 を備えた導電性でかつガス不透過性の材料よりなる一組のセパレータ 10 により挟持して単セル 11 が構成される。

【0003】 図 7 は、固体高分子形燃料電池スタックの基本構成を示す断面図である。多数の単セル 11 を積層し、集電板 12、電気絶縁と熱絶縁を目的とする絶縁板 13 ならびに荷重を加えて積層状態を保持するための締付板 14 によって挟持し、ボルト 15 とナット 17 により締め付けられており、締め付け荷重は、皿パネ 16 により加えられている。

【0004】 固体高分子電解質膜 1 は分子中にプロトン交換基を有しており、含水量を飽和させると比抵抗が常温で $20 \Omega \cdot \text{cm}^2$ 以下となり、プロトン導電性電解質として機能する。このように固体高分子電解質膜 1 は含水させることによりプロトン導電性電解質として機能するもので、固体高分子形燃料電池においては、反応ガスに水蒸気を飽和に含ませて各単セル 11 に供給して運転する方法が採られている。

【0005】 燃料極 7 に水素を含む燃料ガス、空気極 6 に酸素を含む酸化剤ガスを供給すると、燃料極 7 では、水素分子を水素イオンと電子に分解する燃料極反応、空気極 6 では、酸素と水素イオンと電子から水を生成する以下の電気化学反応がそれぞれ行われ、燃料極から空気極に向かって外部回路を移動する電子により電力が負荷に供給されるとともに、空気極側に水が生成されることとなる。

【0006】 燃料極： $\text{H}_2 \rightarrow 2\text{H}^+ + 2\text{e}^-$ （燃料極反応）

空気極： $2\text{H}^+ + (1/2)\text{O}_2 + 2\text{e}^- \rightarrow \text{H}_2\text{O}$ （空気極反応）

全体： $\text{H}_2 + (1/2)\text{O}_2 \rightarrow \text{H}_2\text{O}$

【0007】 このように、空気極 6 側では反応により水が生成される上に、燃料極 7 側からの水素イオンの移動に伴って空気極 6 側に移動する水も存在する。そのためガス拡散層 4 および 5 は、1) 供給される反応ガスを触媒層に均一に供給する、2) 電流を外部に伝える、3) 反応生成水および移動水の給排出を良好にコントロールするなどの機能が要求される。そのため、従来はガス拡散層 4 および 5 としてカーボンペーパー、カーボクロスなどの導電性多孔性材料や、この導電性多孔性材料に撥水処理をした材料や、この導電性多孔性材料にカーボン粉末と撥水性充填剤からなる混合物を塗布した材料が使用されていた。しかし、従来のガス拡散層は高価である上、カーボンペーパーの場合は機械的強度が不足し脆いの

で、バッチ式で製造されており、電極製造に関し、連続形成が困難であり、量産性に劣る問題があった。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】本発明の第1の目的は、従来の問題を解決し、ガス透過性、撥水性などに優れるとともに機械的強度にも優れており、連続形成が可能である安価な燃料電池用ガス拡散層を提供することである。本発明の第2の目的は、そのような燃料電池用ガス拡散層を容易に製造するための方法を提供することである。

【0009】

【課題を解決するための手段】本発明者等は従来の問題を解決するために鋭意研究した結果、例えばステンレス製メッシュのような耐熱性および耐酸性を有する網状シートを用い、このシートの空隙部に例えばカーボン粉末のような導電性粉末とフッ素樹脂のような撥水性充填剤からなる混合物を充填して形成したガス拡散層を用いることにより、課題を解決できることを見だし、本発明を成すに至った。

【0010】すなわち、本発明の請求項1記載の燃料電池用ガス拡散層は、電解質膜の両面に燃料極側触媒層および空気極側触媒層を配置し、さらに燃料極側触媒層および空気極側触媒層の外面にそれぞれガス拡散層を配置した燃料電池の前記ガス拡散層の少なくとも1つに用いるガス拡散層であって、耐熱性および耐酸性を有する網状シートと、この網状シートの空隙部を充填する導電性粉末と撥水性充填剤との混合物から形成されていることを特徴とするものである。

【0011】本発明の請求項2記載の燃料電池用ガス拡散層は、請求項1記載の燃料電池用ガス拡散層において、前記触媒層に当接する前記ガス拡散層の面に、導電性粉末と撥水性充填剤との混合物から形成されるとともに前記ガス拡散層より小さい空隙率を有する第2ガス拡散層が積層されていることを特徴とする。

【0012】本発明の請求項3記載の燃料電池用ガス拡散層は、請求項2記載の燃料電池用ガス拡散層において、第2ガス拡散層に含まれる撥水性充填剤の含有量が前記ガス拡散層に含まれる撥水性充填剤の含有量よりも大きいことを特徴とする。

【0013】本発明の請求項4記載の燃料電池用ガス拡散層は、請求項1から請求項3のいずれかに記載の燃料電池用ガス拡散層において、前記網状シートを形成する繊維が予め撥水性材料により被覆されていることを特徴とする。

【0014】本発明の請求項5記載の燃料電池用ガス拡散層は、請求項2から請求項4のいずれかに記載の燃料電池用ガス拡散層において、第2ガス拡散層の厚みが前記ガス拡散層の厚みより小さいことを特徴とする。

【0015】本発明の請求項6記載の燃料電池用ガス拡散層は、請求項2から請求項5のいずれかに記載の燃料

電池用ガス拡散層において、前記ガス拡散層および第2ガス拡散層に用いる導電性粉末がカーボン粉末であり、かつ前記ガス拡散層に用いるカーボン粉末の比表面積が第2ガス拡散層に用いるカーボン粉末の比表面積よりも小さいことを特徴とする。

【0016】本発明の請求項7は、導電性粉末と撥水性充填剤と造孔剤粉末との混合物を用いてガス拡散層（前駆体）を作った後、あるいはさらに第2ガス拡散層（前駆体）を積層した後、熱処理して造孔剤を分解、飛散させて微細孔を形成したガス拡散層とすることを特徴とする請求項1あるいは請求項2記載の燃料電池用ガス拡散層の製法である。

【0017】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態を図面を用いて詳細に説明する。図1（イ）は、本発明の燃料電池用ガス拡散層の1実施形態の断面を模式的に説明する説明図であり、（ロ）は耐熱性を有する網状多孔性シートの平面説明図である。なお、図1（イ）、（ロ）において図6に示した構成部分と同じ構成部分には同一参照符号を付すことにより、重複した説明を省略する。

【0018】図1（イ）に示すように本発明の燃料電池用ガス拡散層4は、金属メッシュのような耐熱性および耐酸性を有する網状シート20の空隙部21にカーボン粉末のような導電性粉末とフッ素樹脂のような撥水性充填剤との混合物22が充填されて形成されている。燃料電池用ガス拡散層4の上部には触媒層2が均一に形成されている。本発明で使用する耐熱性および耐酸性を有する網状シート20の材質は特に限定されず、例えば金属、セラミックス、ガラス、エンジニアリングプラスチックなどを使用することができる。金属としては、具体的には例えば、ステンレス系金属（SUS316、SUS304など）、チタンあるいはチタン合金などを挙げることができる。網状シート20の孔径も特に限定されないが、ポロシティ（多孔度）がおよそ70～95％程度のものを用いることが好ましい。網状シート20の形態も特に限定されず、金網状、平織状、編織布状、メッシュ状、パンチングメタル状などいずれも使用できる。

【0019】網状シート20は機械的強度が高いのでセル支持材としての役割をはたすことができる。網状シート20の空隙部21にカーボン粉末のような導電性粉末とフッ素樹脂のような撥水性充填剤との混合物22が充填されて形成されているので、ガス透過性、撥水性などに優れ、反応ガスを触媒層によく拡散させて供給できるとともに反応生成水や移動水の排出を良好に行うことができる。また機械的強度に優れているので、容易に連続形成でき、安価なガス拡散層を提供できる。

【0020】網状シート20はそのまま使用することも可能であるが、網状シート20の繊維をフッ素樹脂のような撥水性材料により予め被覆しておくことが好まし

い。予め被覆しておくことにより、網状シート20の繊維近傍の撥水性が高まりガス透過性が向上、保持されると共に、この撥水性材料が繊維とカーボン粉末のような導電性粉末の接着剤として働き、燃料電池用ガス拡散層4からカーボン粉末のような導電性粉末の脱落を防止できる。撥水性充填剤としては、具体的には、例えばポリテトラフルオロエチレン、パーフルオロカーボンスルホン酸、テトラフルオロエチレン-ペルフルオロアルキルビニルエーテル共重合体、テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリフッ化ビニリデン、ポリフッ化ビニルおよびテトラフルオロエチレン-エチレン共重合体などを例示することができる。導電性粉末としては、具体的には、例えばカーボン粉末、グラファイト粉末、炭素繊維粉末、金属粉末、金属繊維粉末、金属メッキセラミックスなどを例示することができる。

【0021】図2(イ)は、本発明の燃料電池用ガス拡散層の他の実施形態の断面を模式的に説明する説明図であり、(ロ)は耐熱性および耐酸性を有する網状シート20の平面説明図である。なお、図2(イ)、(ロ)において図6に示した構成部分と同じ構成部分には同一参照符号を付すことにより、重複した説明を省略する。

【0022】図2(イ)に示すように本発明の燃料電池用ガス拡散層4Aは、金属メッシュのような耐熱性および耐酸性を有する網状シート20の空隙部21にカーボン粉末のような導電性粉末とフッ素樹脂のような撥水性充填剤との混合物22が充填されて形成されているガス拡散層4の触媒層2に当接する面に、導電性粉末と撥水性充填剤とからなる混合物であって前記混合物22と同じ組成比であるかあるいは異なる組成比を有する混合物から形成されるとともにガス拡散層4より小さい空隙率を有する第2ガス拡散層23が積層されている。第2ガス拡散層23の上部には触媒層2が均一に形成されている。

【0023】この構成を取ることで、本発明の燃料電池用ガス拡散層4Aは、機械的強度が高い網状シート20を有するガス拡散層4がセル支持材としての役割を果たし、第2ガス拡散層23はより均一な触媒層2の形成を可能にする。そしてガス拡散層4より小さい空隙率を有する第2ガス拡散層23を積層して設けたことにより、第2ガス拡散層23が反応生成水および移動水の給排出を良好にコントロールする役割を果たす。

【0024】第2ガス拡散層23に含まれる撥水性材料の含有量は特に限定されないが、ガス拡散層4に含まれる撥水性材料の含有量より高めることが好ましい。ガス拡散層4に含まれる撥水性材料の含有量より高めることにより、反応生成水および移動水の反応ガスへの蒸発飛散を抑制することができる。

【0025】前記のように網状シート20はそのまま使用することも可能であるが、網状シート20の繊維をフ

ッ素樹脂のような撥水性材料により予め被覆しておくことにより、網状シート20の繊維近傍の撥水性が高まりガス透過性が向上、保持されると共に、この撥水性材料が繊維とカーボン粉末のような導電性粉末の接着剤として働き、ガス拡散層4からカーボン粉末のような導電性粉末の脱落を防止できる。

【0026】第2ガス拡散層23の厚みは特に限定されない。第2ガス拡散層23の厚みをガス拡散層4の厚みよりも小さくすることが好ましい。こうすることにより、ガス拡散性に劣る第2ガス拡散層の影響が小さくなり、セル全体としてのガス拡散性が保持される。

【0027】ガス拡散層4および第2ガス拡散層4Aに用いる導電性粉末は特に限定されない。しかし導電性粉末としてカーボン粉末は入手が容易で安価であるので好ましく使用できる。しかもガス拡散層4のカーボン粉末の比表面積が第2ガス拡散層4Aのカーボン粉末の比表面積よりも小さいように構成することが好ましい。こうすることにより、ガス拡散層4の吸収性が第2ガス拡散層よりも高まり、第2ガス拡散層4Aで過剰になる水分を停滞したり滞留したりせずに速やかにガス拡散層4に移動し、ガス中に蒸散させることができる。

【0028】図3は、図2に示した本発明の燃料電池用ガス拡散層の製法の1実施形態を説明する説明図である。図3に示すように、まず、金属メッシュのような耐熱性および耐酸性を有する網状シートを用意し、次いでフッ素樹脂のような撥水性材料のエマルジョンなどで処理し、熱処理することにより撥水処理した網状シートを作る。

【0029】そしてこの撥水処理網状シートの空隙部に導電性粉末と撥水性充填剤と造孔剤粉末との混合物を充填してガス拡散層(前駆体)を作る。そして、このガス拡散層(前駆体)の上に導電性粉末と撥水性充填剤との混合物を塗布、積層して第2ガス拡散層(前駆体)を形成する。

【0030】そして、第2ガス拡散層(前駆体)を積層したガス拡散層(前駆体)を熱処理して、前記ガス拡散層(前駆体)中の造孔剤を分解、飛散、除去して微細孔を有し空隙率の高いガス拡散層とするとともに、両ガス拡散層(前駆体)中の撥水性充填剤を焼結することにより本発明の燃料電池用ガス拡散層を得ることができる。

【0031】上記の実施形態では第2ガス拡散層(前駆体)を積層した後、熱処理したが、第2ガス拡散層(前駆体)を積層する前に前記ガス拡散層(前駆体)を熱処理して造孔剤を分解、飛散、除去してガス拡散層とした後、第2ガス拡散層を形成してもよい。

【0032】この製法により、造孔剤を分解、飛散、除去工程を追加するのみでガス拡散層の空隙率を自在に変更した本発明の燃料電池用ガス拡散層を容易に製造することが可能になる。

【0033】

【実施例】以下実施例および比較例により本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例に何ら制約されるものではない。

(実施例1)

① SUS316製の金属メッシュ（線径0.2mm）を比重1.09に調整したFEPディスパージョンに浸漬した後、乾燥、熱処理（360℃、30分）し、表面にFEP層が一部形成された金属メッシュを作製した。

【0034】② Vulcan XC-72（比表面積：250～300m²/g）7g、PTFE（ポリテトラフルオロエチレン）粉末（PTFE 6CJ）3gおよび造孔剤粉末（炭酸水素アンモニウム）14gをケロシンを分散媒として混合し、余分なケロシンを除去する。得られた混合物をローラによりシート成形する。

【0035】③ 上記②で得られたシート成形体と上記①で得られた金属メッシュを積層し、圧延することにより、金属メッシュ厚みにほぼ等しい厚みに仕上げ、金属メッシュの空隙部に上記混合物が充填されたシート状成形体〔ガス拡散層（前駆体）〕を得た。

【0036】④ 上記③で得られたシート状成形体を60℃で30分熱処理して造孔剤粉末（炭酸水素アンモニウム）を分解、飛散させて除去したガス拡散層（前駆体）を作った。

【0037】⑤ Vulcan XC-72 6g、60質量%PTFEディスパージョン6.67gをテルピネオールを分散媒として混合、適度な粘度を有するペーストを作製する。

【0038】⑥ 上記⑤で得られたペーストを上記④で得られたシート〔ガス拡散層（前駆体）〕上に0.05mm程度の厚みで塗布した後、60℃で30分乾燥して、ガス拡散層（前駆体）の上に第2ガス拡散層（前駆体）を積層した。

【0039】⑦ 乾燥後、360℃で30分熱処理して、PTFE（撥水性充填剤）を焼結することにより本発明の燃料電池用ガス拡散層を作った。

【0040】（実施例2）

① SUS316製の金属メッシュ（線径0.2mm）を比重1.09に調整したFEPディスパージョンに浸漬した後、乾燥、熱処理（360℃、30min）し、表面にFEP層が一部形成された金属メッシュを作製した。

【0041】② ケッチェンブラック（比表面積：800m²/g）7g、PTFE粉末（PTFE 6CJ）3gおよび造孔剤粉末（炭酸水素アンモニウム）14gをケロシンを分散媒として混合し、余分なケロシンを除去する。得られた混合物をローラによりシート成形する。

【0042】③ 上記②で得られたシート成形体と上記①で得られた金属メッシュを積層し、圧延することにより、金属メッシュ厚みにほぼ等しい厚みに仕上げ、金属

メッシュの空隙部に上記混合物が充填されたシート状成形体〔ガス拡散層（前駆体）〕を得た。

【0043】④ 上記③で得られたシート状成形体〔ガス拡散層（前駆体）〕を60℃で30分乾燥後、360℃で30分熱処理して、シート状成形体〔ガス拡散層（前駆体）〕中の造孔剤粉末（炭酸水素アンモニウム）を分解、飛散させるとともに、PTFE（撥水性充填剤）を焼結してガス拡散層を作った。

【0044】⑤ Vulcan XC-72 6g、60質量%PTFEディスパージョン6.67gをテルピネオールを分散媒として混合、適度な粘度を有するペーストを作製する。

【0045】⑥ 上記⑤で得られたペーストを上記④で得られたシート（ガス拡散層）上に0.02mm程度の厚みで塗布した後、60℃で30分乾燥し、第2ガス拡散層（前駆体）を積層した。

⑦ 乾燥後、360℃で30分熱処理して、第2ガス拡散層（前駆体）中のPTFE（撥水性充填剤）を焼結することにより本発明の燃料電池用ガス拡散層を作った。

【0046】（比較例1）

① 東レ製カーボンペーパーTGP-060（厚み：0.2mm）を比重1.10に調整したPTFEディスパージョンに浸漬した後、乾燥・熱処理（360℃、30分）する。

② Vulcan XC-72 6g、60質量%PTFEディスパージョン6.67gをテルピネオールを分散媒として混合、適度な粘度を有するペーストを作製する。

③ 上記②で得られたペーストを上記①で得られたシート上に0.02mm程度の厚みで塗布した後、60℃で30分乾燥して、ガス拡散層（前駆体）を作った。

④ 乾燥後、360℃で30分熱処理して、PTFE（撥水性充填剤）を焼結することにより比較のためのガス拡散層を作った。

【0047】〔テスト用単セル〕実施例1、2および比較例1で作製したガス拡散層を空気極側のガス拡散層とするとともに、燃料極側のガス拡散層としてはいずれも比較例1で作製したガス拡散層を用いて、電極面積25cm²のテスト用単セルを作製し各単セルの評価を行った。

【0048】〔試験結果〕図4に実施例1、2および比較例1のガス拡散層を用いた単セルの電流電圧特性を示す。いずれの実施例で作製した単セルにおいても、比較例1とほぼ同等性能が得られた。図5に実施例1、2および比較例1のそれぞれの単セルにおけるセル電圧の空気利用率依存性を示す。実施例2の場合、高空気利用率側で電圧が急激に下がる傾向が見られたが、低い空気利用率側での電圧低下量が従来例、実施例1に比べて小さくなる傾向が見られ、いずれの実施例で作製した単セルにおいても、比較例1とほぼ同等性能が得られた。

【0049】

【発明の効果】本発明の請求項1記載の燃料電池用ガス拡散層は、耐熱性および耐酸性を有する網状シートと、この網状シートの空隙部を充填する導電性粉末と撥水性充填剤との混合物から形成されていることを特徴とするものであり、網状シートとして高強度で安価な材料が使用できるために、燃料電池の単セルの材料コストにおいて大きな比率を占めるガス拡散層を低コストで作製することが可能となる上、網状シートにフレキシブルな材料を用いることによって、ガス拡散層（シート）の巻き上げが可能となるため、量産性に優れた生産が可能となり、また網状シートは機械的強度が高いのでセル支持材としての役割をはたすなどの顕著な効果を奏する。また本発明の請求項1記載の燃料電池用ガス拡散層は、ガス透過性、撥水性などに優れ、反応ガスを触媒層によく拡散させて供給できるとともに反応生成水や移動水の排出を良好に行うことができるという顕著な効果を奏する。

【0050】本発明の請求項2記載の燃料電池用ガス拡散層は、請求項1記載の燃料電池用ガス拡散層において、前記触媒層に当接する前記ガス拡散層の面に、導電性粉末と撥水性充填剤との混合物から形成されるとともに前記ガス拡散層より小さい空隙率を有する第2ガス拡散層が積層されているので、請求項1記載の燃料電池用ガス拡散層と同じ効果を奏するとともに、第2ガス拡散層はより均一な触媒層の形成を可能にするとともに、反応生成水および移動水の給排出を良好にコントロールする役割を果たすという顕著な効果を奏する。

【0051】本発明の請求項3記載の燃料電池用ガス拡散層は、請求項2記載の燃料電池用ガス拡散層において、第2ガス拡散層に含まれる撥水性充填剤の含有量を前記ガス拡散層に含まれる撥水性充填剤の含有量よりも大きくしたので、反応生成水および移動水の反応ガスへの蒸発飛散を抑制することができるという顕著な効果を奏する。

【0052】本発明の請求項4記載の燃料電池用ガス拡散層は、請求項1から請求項3のいずれかに記載の燃料電池用ガス拡散層において、前記網状シートを形成する繊維が予め撥水性材料により被覆されているので、網状シートの繊維近傍の撥水性が高まりガス透過性が向上、保持されると共に、この撥水性材料が繊維とカーボン粉末のような導電性粉末の接着剤として働き、燃料電池用ガス拡散層からカーボン粉末のような導電性粉末の脱落を防止できるという顕著な効果を奏する。

【0053】本発明の請求項5記載の燃料電池用ガス拡散層は、請求項2から請求項4のいずれかに記載の燃料電池用ガス拡散層において、第2ガス拡散層の厚みを前記ガス拡散層の厚みより小さくしたので、ガス拡散性に劣る第2ガス拡散層の影響が小さくなり、セル全体としてのガス拡散性が保持されるという顕著な効果を奏する。

【0054】本発明の請求項6記載の燃料電池用ガス拡散層は、請求項2から請求項6のいずれかに記載の燃料電池用ガス拡散層において、前記ガス拡散層および第2ガス拡散層に用いる導電性粉末が入手が容易で安価であるカーボン粉末であり、かつ前記ガス拡散層に用いるカーボン粉末の比表面積が第2ガス拡散層に用いるカーボン粉末の比表面積よりも小さくしたので、ガス拡散層の吸収性が第2ガス拡散層よりも高まり、第2ガス拡散層で過剰になる水分を停滞したり滞留したりせずに速やかにガス拡散層に移動し、ガス中に蒸散させることができるという顕著な効果を奏する。

【0055】本発明の請求項7記載の燃料電池用ガス拡散層の製法により、造孔剤を分解、飛散、除去工程を追加するのみでガス拡散層の空隙率を自在に変更した燃料電池用ガス拡散層を容易に製造することが可能になるという顕著な効果を奏する。

【図面の簡単な説明】

【図1】（イ）は、本発明の燃料電池用ガス拡散層の1実施形態の断面を模式的に説明する説明図であり、

（ロ）は耐熱性を有する網状シートの平面説明図である。

【図2】（イ）は、本発明の他の燃料電池用ガス拡散層の断面を模式的に説明する説明図であり、（ロ）は耐熱性を有する網状シートの平面説明図である。

【図3】本発明の燃料電池用ガス拡散層の1実施形態の製法を説明する説明図である。

【図4】セル電圧－電流密度の関係を示すグラフである。

【図5】セル電圧－空気利用率の関係を示すグラフである。

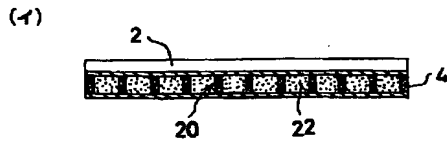
【図6】燃料電池の1形態である固体高分子形燃料電池の単セルの基本構成を示す分解断面図である。

【図7】固体高分子形燃料電池スタックの基本構成を示す断面図である。

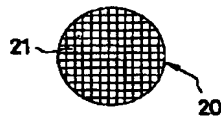
【符号の説明】

- 1 固体高分子電解質膜
- 2 空気極側触媒層
- 3 燃料極側触媒層
- 4 空気極側ガス拡散層
- 5 燃料極側ガス拡散層
- 6 空気極
- 7 燃料極
- 8 ガス流路
- 9 冷却水流路
- 10 セパレータ
- 11 単セル
- 20 網状シート
- 21 空隙部
- 22 導電性粉末と撥水性充填剤との混合物
- 23 第2ガス拡散層

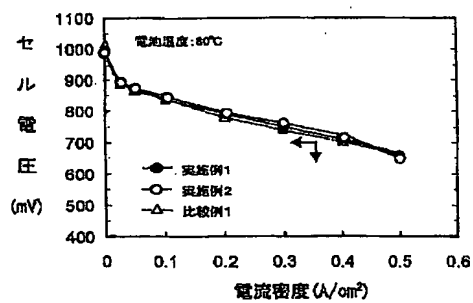
【図1】



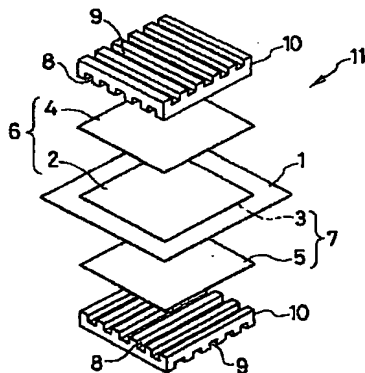
(ロ)



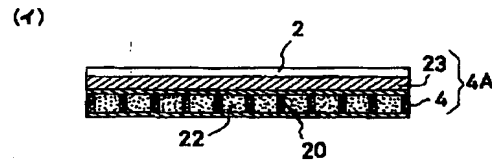
【図4】



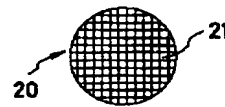
【図6】



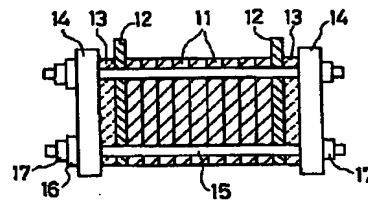
【図2】



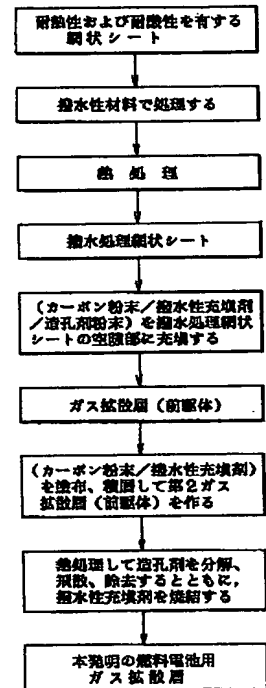
(ロ)



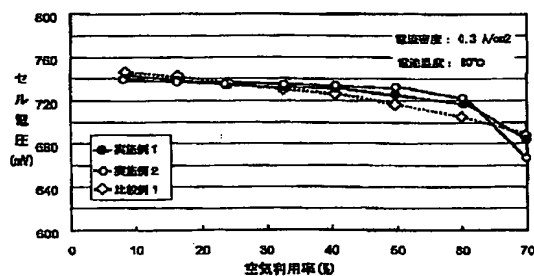
【図7】



【図3】



【図5】



フロントページの続き

Fターム(参考) 5H018 AA06 AS02 AS03 BB01 BB08
BB12 DD03 EE02 EE05 EE10
EE19 HH02 HH03
5H026 AA06 BB01 BB04 BB08 EE05
EE19 HH02 HH03